

DERWENT-ACC-NO: 2003-104680

DERWENT-WEEK: 200449

COPYRIGHT 2005 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Transparent biaxially oriented polyester film, contains  
a thermoplastic polyester, and a pigment system

INVENTOR: HILKERT, G; MUELLER-ROOSEN, M ; PEIFFER, H ; PFEIFFER, H

PATENT-ASSIGNEE: MITSUBISHI POLYESTER FILM GMBH[MITU] , HOECHST DIAFOIL  
GMBH[FARH], HILKERT G[HILKI], MUELLER-ROOSEN M[MUELI], PEIFFER H[PEIFI]

PRIORITY-DATA: 2001DE-1009217 (February 26, 2001)

PATENT-FAMILY:

| PUB-NO            | PUB-DATE           | LANGUAGE | PAGES | MAIN-IPC    |
|-------------------|--------------------|----------|-------|-------------|
| US 20040142194 A1 | July 22, 2004      | N/A      | 000   | H05H 001/26 |
| EP 1234848 A1     | August 28, 2002    | G        | 016   | C08J 005/18 |
| DE 10109217 A1    | September 5, 2002  | N/A      | 000   | C08J 005/18 |
| JP 2002275289 A   | September 25, 2002 | N/A      | 011   | C08J 005/18 |
| US 20020160171 A1 | October 31, 2002   | N/A      | 000   | B32B 027/36 |
| KR 2002069481 A   | September 4, 2002  | N/A      | 000   | C08J 005/18 |

BEST AVAILABLE COPY

DESIGNATED-STATES: AL AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LT LU LV MC MK  
NL PT RO SE SI TR

APPLICATION-DATA:

| PUB-NO          | APPL-DESCRIPTOR | APPL-NO        | APPL-DATE         |
|-----------------|-----------------|----------------|-------------------|
| US20040142194A1 | Cont of         | 2002US-0077454 | February 15, 2002 |
| US20040142194A1 | N/A             | 2003US-0740008 | December 18, 2003 |
| EP 1234848A1    | N/A             | 2002EP-0003129 | February 14, 2002 |
| DE 10109217A1   | N/A             | 2001DE-1009217 | February 26, 2001 |
| JP2002275289A   | N/A             | 2002JP-0049264 | February 26, 2002 |
| US20020160171A1 | N/A             | 2002US-0077454 | February 15, 2002 |
| KR2002069481A   | N/A             | 2002KR-0007534 | February 8, 2002  |

JP 2002-275289 6

φΔP

INT-CL (IPC): B29C047/14, B29C049/08, B29C055/00, B29C055/12, B29C059/00, B29D007/01, B29K067:00, B29K105:16, B29K105:32, B29L007:00, B32B027/36, B32B031/28, C08G063/00, C08J003/20, C08J005/18, C08K003/00, C08L067:00, D06N007/04, H05H001/26

ABSTRACTED-PUB-NO: EP 1234848A

BASIC-ABSTRACT:

NOVELTY - A transparent biaxially oriented polyester film containing at least 80 wt.% thermoplastic polyester, and a pigment system in amount 0.05-0.5 wt.% relative to the total weight of film, and having (a) a mean grain diameter (d50 value) of 1.5-5 micron, and (b) a distribution deviation, expressed in terms of SPAN 98, at most 1.9 is new.

DETAILED DESCRIPTION - An INDEPENDENT CLAIM is included for preparation of the film by extrusion, where the polyester is first compressed in the extruder, liquefied and homogenized, with, if necessary, addition of additives already present in the polyester, pressing of the melt through a flat nozzle, pulling of the pressed melt over one/or more calender rollers, strengthening to a pre-film, biaxial stretching and thermal fixing of this, corona or flame treatment of the surface to be handled. The temperature in longitudinal stretching is 80-130 deg. C and in the transverse direction 90-150 deg. C, at a longitudinal stretching ratio of 2.5:1 to 6:1, preferably 3:1 to 5.5:1, and in the transverse direction 3.0:1 to 5.0:1, preferably 3.5:1 to 4.5:1

USE - The film is useful for flexible packaging, especially on quick acting packaging machines, and for embossing applications in the industrial sector.

ADVANTAGE - The film has very good optical properties, especially high glaze and low haze, is easily coiled or wound, e.g.

CHOSEN-DRAWING: Dwg.0/0

TITLE-TERMS: TRANSPARENT BIAXIAL ORIENT POLYESTER FILM CONTAIN THERMOPLASTIC POLYESTER PIGMENT SYSTEM

DERWENT-CLASS: A23 A92 P73

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002-275289

(P2002-275289A)

(43)公開日 平成14年9月25日(2002.9.25)

| (51)Int.Cl.      | 識別記号 | F I           | テマコード(参考)     |
|------------------|------|---------------|---------------|
| C 0 8 J 5/18     | CFD  | C 0 8 J 5/18  | CFD 4 F 0 7 1 |
| B 2 9 C 55/12    |      | B 2 9 C 55/12 | 4 F 2 1 0     |
| // B 2 9 K 67:00 |      | B 2 9 K 67:00 |               |
| 105: 16          |      | 105: 16       |               |
| 105: 32          |      | 105: 32       |               |

審査請求 未請求 請求項の数26 O L (全 11 頁) 最終頁に続く

|             |                           |         |  |
|-------------|---------------------------|---------|--|
| (21)出願番号    | 特願2002-49264(P2002-49264) | (71)出願人 | 596099734<br>ミツビシ ポリエステル フィルム ジー<br>エムビーエイチ<br>ドイツ連邦共和国、ヴィースバーデン、D<br>-65203、ラインガウストラッセ190-196 |
| (22)出願日     | 平成14年2月26日(2002.2.26)     | (72)発明者 | ヘルベルト・バイフェル<br>ドイツ連邦共和国、ディー-55126 マイ<br>ンツ、トイリンゲルストラッセ 26                                      |
| (31)優先権主張番号 | 1 0 1 0 9 2 1 7 . 2       | (72)発明者 | マルティン・ムエレルーローゼン<br>ドイツ連邦共和国、ディー-55128 マイン<br>ツ、アム オステルグラーベン 77                                 |
| (32)優先日     | 平成13年2月26日(2001.2.26)     | (74)代理人 | 100097928<br>弁理士 岡田 数彦   |
| (33)優先権主張国  | ドイツ (DE)                  |         | 最終頁に続く   |

(54)【発明の名称】 透明二軸延伸ポリエステルフィルム及びその製造方法

(57)【要約】

【課題】 高グロス且つ低ヘーズで、優れた巻取り特性を有する透明二軸延伸ポリエステルフィルムを提供する。

【解決手段】 80重量%以上の熱可塑性ポリエステルから成る透明二軸延伸ポリエステルフィルムであって、当該フィルムは、フィルムの重量を基準として0.05~0.5重量%の粒子を含有し、当該粒子は(a)メジアン粒径 $d_{50}$ が1.5~5 $\mu$ mであり、(b)SPAN98法で表される粒子の粒径分布が1.9以下であることを特徴とする透明二軸延伸ポリエステルフィルム。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 80重量%以上の熱可塑性ポリエステルから成る透明二軸延伸ポリエステルフィルムであって、当該フィルムは、フィルムの重量を基準として0.05～0.5重量%の粒子を含有し、当該粒子は(a)メジアン粒径 $d_{50}$ が1.5～5 $\mu\text{m}$ であり、(b)SPAN98法で表される粒子の粒径分布が1.9以下であることを特徴とする透明二軸延伸ポリエステルフィルム。

【請求項2】 粒子のメジアン粒径 $d_{50}$ が1.6～4.9 $\mu\text{m}$ である請求項1に記載のフィルム。

【請求項3】 粒子のメジアン粒径 $d_{50}$ が1.7～4.8 $\mu\text{m}$ である請求項1に記載のフィルム。

【請求項4】 SPAN98法で表される粒子の粒径分布が1.8以下である請求項1～3の何れかに記載のフィルム。

【請求項5】 SPAN98法で表される粒子の粒径分布が1.7以下である請求項1～3の何れかに記載のフィルム。

【請求項6】 フィルムの総厚さが1～50 $\mu\text{m}$ である請求項1～5の何れかに記載のフィルム。

【請求項7】 フィルムのグロスが150以上である請求項1～6の何れかに記載のフィルム。

【請求項8】 フィルムのヘーズが4.0%以下である請求項1～7の何れかに記載のフィルム。

【請求項9】 フィルムの表面粗度 $R_a$ が30～150nmである請求項1～8の何れかに記載のフィルム。

【請求項10】 フィルムの表面粗度 $R_a$ が35～140nmである請求項1～8の何れかに記載のフィルム。

【請求項11】 フィルムの表面粗度 $R_a$ が40～130nmである請求項1～8の何れかに記載のフィルム。

【請求項12】 フィルムの表面ガス流量が4～200秒である請求項1～11の何れかに記載のフィルム。

【請求項13】 フィルムの表面ガス流量が5～180秒である請求項1～12の何れかに記載のフィルム。

【請求項14】 フィルムの面配向度 $\Delta p$ が0.165以上である請求項1～13の何れかに記載のフィルム。

【請求項15】 フィルムの面配向度 $\Delta p$ が0.166以上である請求項1～13の何れかに記載のフィルム。

【請求項16】 フィルムの面配向度 $\Delta p$ が0.167以上である請求項1～13の何れかに記載のフィルム。

【請求項17】 請求項1～16に記載の透明二軸延伸ポリエステルフィルムの製造方法であって、当該製造方法は、1)添加剤を含有する各層用の熔融ポリエステルの押出ダイに供給する工程と、2)フラットフィルム押出ダイを介して熔融ポリエステルの押出工程と、3)冷却ロール及び引取りロールを使用して押出成形物を引取り積層アモルファスシートを得る工程と、4)得られたアモルファスシートを長手方向および横方向に二軸延伸して二軸延伸フィルムを得る工程と、5)得られた二軸延伸フィルムを熱固定する工程とから成り、上記

二軸延伸工程に於て、長手方向の延伸温度が80～130℃及び横方向の延伸温度が90～150℃であり、長手方向の延伸比が2.5～6及び横方向の延伸比が3.0～5.0であることを特徴とする透明二軸延伸ポリエステルフィルムの製造方法。

【請求項18】 長手方向の延伸比が3～5.5及び横方向の延伸比が3.5～4.5である請求項17に記載のフィルムの製造方法。

【請求項19】 熱固定後にフィルムの片面または両面に、コロナ処理または火炎処理を行う請求項17又は18に記載のフィルムの製造方法。

【請求項20】 表面張力が45mN/m以上に成る様にコロナ処理または火炎処理を行う請求項19に記載のフィルムの製造方法。

【請求項21】 熱固定が150～250℃で0.1～10秒間行われる請求項17～20に記載のフィルムの製造方法。

【請求項22】 フィルムの製造工程において生じるフィルムの端材を、フィルムの総重量を基準として20～60重量%の量で配合する請求項17～21の何れかに記載のフィルムの製造方法。

【請求項23】 請求項1～16に記載のフィルムから成る可撓性包装材。

【請求項24】 高速包装機械で使用可能な請求項23に記載の可撓性包装材。

【請求項25】 請求項1～16に記載のフィルムから成る工業用セクター。

【請求項26】 請求項1～16に記載のフィルムから成るスタンピング部材。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は透明二軸延伸ポリエステルフィルムに関し、詳しくは、本発明は、高グロス且つ低ヘーズで、優れた巻取り特性を有し、酸素ガスバリア性に優れ、製造工程にて生じるフィルム端部をフィルムの物性に影響を及ぼすことなくフィルムの総重量の60重量%まで混入することができる透明二軸延伸ポリエステルフィルムに関する。本発明は、更に、上記フィルムの製造方法およびその使用にも関する。

## 【0002】

【従来の技術】包装業界に於て、二軸延伸ポリプロピレンフィルムや二軸延伸ポリエステルフィルムの様な高透明性で高グロスの熱可塑性フィルムの需要が高まっている。この様な高透明性で高グロスのフィルムは、その特徴的な外観により包装フィルムとして好適であり、包装物の商品価値を高め、消費者の購買欲を高める働きがある。この種のフィルムに於ては、優れた光学的特性が要求されるだけでなく、優れたフィルムの巻取り特性が要求される。特に、フィルム製造工程に於て、引取りロールから幅広の商品用巻取りロールにフィルムを高速で巻

取ることが、必ずしも満足に行われていない。

【0003】欧州特許第0347646号公開公報には、0.5～50%のフィラーを含有する少なくとも1つの外層(A)を有する二軸延伸ポリエステルフィルムを教示している。フィラーの粒径と外層の厚さとは特別な関係を有している。外層は特定の厚さを有し、且つラマンスペクトルより決定される特定の結晶化度を有している。外層(A)の表面形状は磁気テープに好適である。しかしながら、この公報にはフィルムの透明性またはグロスに関する記載が無く、又、フィルムの透明性およびグロスは満足すべきものではない。

【0004】欧州特許第0514129号公開公報には、ポリマー材料から成る基材層と、所定の粒径分布を有するガラスビーズ及び二酸化ケイ素粒子を所定量含有する少なくとも1つの外層とから成る透明多層フィルムを教示している。外層は基材層の片面または両面に積層される。この公報には、ヘーズおよび加工性が改良されることが記載されているが、グロス及び巻取り特性の改良については教示されてない。

【0005】欧州特許第0604057号公開公報には、実質的にフィラーを含有しないポリマー材料から成る基材層と、1.5～12.5 $\mu$ mのメジアン粒径を有するシリコン樹脂を100～1000ppm含有する少なくとも1つの外層とから成る透明多層フィルムを教示している。しかしながら、シリコン樹脂粒子を使用した場合、包装市場においては容認できないほどコスト高になる。また、この種の粒子を添加した場合、フィルムの巻取りの際にわん状変形が生じる。さらに、この公報には、フィルムの表面形状とグロスおよび巻取り特性の改良とに関する関係が教示されていない。

【0006】独国特許第1694404号公開公報には、少なくとも1つの外層を有する配向結晶性熱可塑性多層フィルムが教示されている。外層は無機または有機粒子を含有する。粒子が二酸化ケイ素の場合、粒径は2～20 $\mu$ mで、含有量は外層の重量に対し1～25重量%である。この多層フィルムはアルミニウムでメタル化され、装飾品や磁気テープとして使用される。しかしながら、この公報には、フィルムの加工性が改良される教示はあるものの、グロスおよび巻取り特性の改良に関する教示は無い。

【0007】欧州特許第0502745号公開公報には、少なくとも3層から成る二軸延伸共押出しポリエステルフィルムを教示している。このフィルムを構成する1つの外層Aは、a) 平均1次粒径 $D_1$ が1～100nmで、外層Aの厚さをTとした場合に $D_1 < T < 200 \cdot D_1$ を満足する無機粒子 $B_1$ を含有し、b) 平均1次粒径 $D_2$ が0.3～2nmで、粒径分布の標準偏差が0.6以下である粒子 $B_2$ を含有し、c)  $D_1 < D_2$ を満足することを特徴とする。このフィルムの加工特性は改良されているものの、この公報には、グロス、ヘーズおよび

巻取り特性の改良に関する教示は無い。

【0008】上述のように、従来技術において優れた光学的特性(高透明性で高グロス)および優れたフィルム巻取り特性を有するポリエステルフィルムは得られてない。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】従って、本発明の目的は、(1) 高グロス(好ましくは150以上)かつ低ヘーズ(好ましくは4.0%以下)の光学特性を有し、(2) 幅広のロールでフィルムを非常に長い長さ高速で巻取ってもしわが発生しない様な巻取り特性に優れ、(3) 通常の製造装置を使用して低コストで容易にフィルムを製造でき、且つ加工性に優れ、(4) メタル化またはセラミックコーティングを施した後の酸素ガスバリア性に優れ(好ましくは酸素透過度が $1.0 \text{ cm}^3/\text{m}^2 \cdot \text{bar} \cdot \text{d}$ 未満)、(5) フィルムの摩擦係数が低く(好ましくは0.6未満)、(6) フィルムの他の性質が、この種の他のフィルムと比較して同一以上であり、(8) 製造工程にて生じるフィルム端部をフィルムの物性に影響を及ぼすことなくフィルムの総重量の60重量%まで混入することができる透明二軸延伸ポリエステルフィルムを提供することに存する。

【0010】

【課題を解決するための手段】本発明者らは鋭意検討した結果、特別な粒径および粒径分布を有する粒子を含有するポリエステルフィルムにより上記目的が達成できることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0011】すなわち本発明の第1の要旨は、80重量%以上の熱可塑性ポリエステルから成る透明二軸延伸ポリエステルフィルムであって、当該フィルムは、フィルムの重量を基準として0.05～0.5重量%の粒子を含有し、当該粒子は(a) メジアン粒径 $d_{50}$ が1.5～5 $\mu$ mであり、(b) SPAN98法で表される粒子の粒径分布が1.9以下であることを特徴とする透明二軸延伸ポリエステルフィルムに存する。

【0012】本発明の第2の要旨は、第1の要旨に記載の透明二軸延伸ポリエステルフィルムの製造方法であって、当該製造方法は、1) 添加剤を含有する各層用の溶融ポリエステルを押出ダイに供給する工程と、2) フラットフィルム押出ダイを介して溶融ポリエステルの押出す工程と、3) 冷却ロール及び引取りロールを使用して押出成形物を引取り積層アモルファスシートを得る工程と、4) 得られたアモルファスシートを長手方向および横方向に二軸延伸して二軸延伸フィルムを得る工程と、5) 得られた二軸延伸フィルムを熱固定する工程とから成り、上記二軸延伸工程に於て、長手方向の延伸温度が80～130℃及び横方向の延伸温度が90～150℃であり、長手方向の延伸比が2.5～6及び横方向の延伸比が3.0～5.0であることを特徴とする透明二軸延伸ポリエステルフィルムの製造方法に存する。

【0013】本発明の第3の要旨は、第1の要旨に記載の透明二軸延伸ポリエステルフィルムから成る可撓性包装材に存する。

【0014】本発明の第4の要旨は、第1の要旨に記載の透明二軸延伸ポリエステルフィルムから成る工業用セクターに存する。

【0015】本発明の第5の要旨は、第1の要旨に記載の透明二軸延伸ポリエステルフィルムから成るスタンピング部材に存する。

【0016】

【発明の実施の形態】以下、本発明を詳細に説明する。本発明のフィルムは、80重量%以上の熱可塑性ポリエステルから成る。

【0017】熱可塑性ポリエステルとしては、エチレングリコールとテレフタル酸から製造されるポリエチレンテレフタレート（PET）、エチレングリコールとナフタレン-2，6-ジカルボン酸から製造されるポリエチレン-2，6-ナフタレート（PEN）、1，4-ビスヒドロキシメチルシクロヘキサンとテレフタル酸から製造されるポリ（1，4-シクロヘキサジメチレンテレフタレート）（PCDT）、エチレングリコールとナフタレン-2，6-ジカルボン酸とビフェニル-4，4'-ジカルボン酸から製造されるポリ（エチレン2，6-ナフタレートビベンゾエート）（PENBB）が好ましい。特にエチレングリコールとテレフタル酸から成る単位またはエチレングリコールとナフタレン-2，6-ジカルボン酸から成る単位が90%以上、好ましくは95%以上のポリエステルが好ましい。

【0018】上記のモノマー以外の残余のモノマー単位は、他のジオール及び/又はジカルボン酸から誘導されたモノマーである。

【0019】共重合ジオールとしては、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、 $\text{HO}-(\text{CH}_2)_n-\text{OH}$ の式で示される脂肪族グリコール（ $n$ は3～6の整数を表す、具体的には、1，3-プロパンジオール、1，4-ブタンジオール、1，5-ペンタンジオール、1，6-ヘキサジオールが挙げられる）、炭素数6までの分岐型脂肪族グリコール、 $\text{HO}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{X}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{OH}$ で示される芳香族ジオール（式中 $\text{X}$ は $-\text{CH}_2-$ 、 $-\text{C}(\text{CH}_3)_2-$ 、 $-\text{C}(\text{CF}_3)_2-$ 、 $-\text{O}-$ 、 $-\text{S}-$ 、 $-\text{SO}_2-$ を表す）、式： $\text{HO}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{C}_6\text{H}_4-\text{OH}$ で表されるビスフェノールが好ましい。

【0020】共重合ジカルボン酸としては、芳香族ジカルボン酸、脂環式ジカルボン酸、脂肪族ジカルボン酸が好ましい。

【0021】脂肪族ジカルボン酸の好ましい例としては、ベンゼンジカルボン酸、ナフタレン-1，4-又は-1，6-ジカルボン酸などのナフタレンジカルボン酸、ビフェニル-4，4'-ジカルボン酸などのビフェニル-x，x'-ジカルボン酸、ジフェニルアセチレン

-4，4'-ジカルボン酸などのジフェニルアセチレン-x，x'-ジカルボン酸、スチルベン-x，x'-ジカルボン酸などが挙げられる。

【0022】脂環式ジカルボン酸の好ましい例としては、シクロヘキサン-1，4-ジカルボン酸などのシクロヘキサジカルボン酸が挙げられる。脂肪族ジカルボン酸の好ましい例としては、 $\text{C}_3-\text{C}_{19}$ のアルカンジカルボン酸が挙げられ、当該アルカンは直鎖状であっても分岐状であってもよい。

10 【0023】上記のポリエステルは、エステル交換反応により製造される。その出発原料は、ジカルボン酸エステルとジオール及び亜鉛塩、カルシウム塩、リチウム塩、マグネシウム、マンガン塩などの公知のエステル交換反応用触媒である。生成した中間体は、更に、三酸化アンチモンやチタニウム塩などの重縮合触媒の存在下で重縮合に供される。また、ポリエステルの製造は、出発原料のジカルボン酸とジオールに重縮合触媒を存在させて直接または連続的にエステル化反応を行う方法であってもよい。

20 【0024】本発明の目的とする光沢性および透明性を得るために、特別な粒子系をポリエステルフィルム中に含有させる。フィルムの重量を基準とした粒子含有量は、0.05～0.5重量%、好ましくは0.055～0.45重量%、特に好ましくは0.06～0.4重量%である。粒子の添加量は、目的とする光学特性やフィルムの走行特性により決定される。

【0025】粒子の添加量が0.5重量%を超える場合、本発明の目的とする光沢性および透明性が得られず、フィルムに曇りが生じ、フィルム表面が艶消し性を有する。粒子の添加量が0.05重量%より少ない場合、フィルムの走行特性が悪化するために、フィルムの加工時にブロッッキングが生じ易くなり、加工特性が悪化する。そのため、特に高速加工機によるフィルムの加工が困難となる。

【0026】粒子の種類としては、無機および/または有機粒子が好ましく、具体的には、炭酸カルシウム、非晶シリカ、タルク、炭酸マグネシウム、炭酸バリウム、硫酸カルシウム、硫酸バリウム、リン酸リチウム、リン酸カルシウム、リン酸マグネシウム、アルミナ、Li F、ジカルボン酸のカルシウム、バリウム、亜鉛またはマンガン塩、カーボンブラック、二酸化チタン、カオリン、架橋ポリスチレン粒子、架橋アクリレート粒子などが例示される。

【0027】さらに、2種以上の異なる粒子を含有させてもよく、また、同じ種類で且つ粒径が異なる粒子の混合物を添加してもよい。重縮合中のグリコール分散系または押出中マスターバッチを介して個々の層に添加する粒子を通常量添加する。上記の粒子の中でも、ポリマーマトリックス中に良好に分散することからコロイダル状または鎖状のシリカ（ $\text{SiO}_2$ ）が好ましい。

【0028】本発明において、添加粒子のメジアン粒径および粒径分布がフィルムのグロス、ヘーズ及び巻取り特性に影響を及ぼすことが見出された。すなわち、メジアン粒径分布が小さいと、フィルムが重なった際に生じる空気層の厚さが均一となり、重なったフィルムのブロッキングが軽減され、フィルムの巻取り特性が向上することが見出された。

【0029】本発明の目的とする可能な限り低いヘーズ、可能な限り高いグロス及び良好な巻取り特性を達成するために、フィルム中に含有させる粒子のメジアン粒径 $d_{50}$ が1.5～5.0 $\mu\text{m}$ である必要がある。粒子のメジアン粒径 $d_{50}$ は、好ましくは1.6～4.9 $\mu\text{m}$ 、特に好ましくは1.7～4.8 $\mu\text{m}$ である。

【0030】さらに、本発明の目的とする可能な限り低いヘーズ、可能な限り高いグロス及び良好な巻取り特性を達成するために、フィルム中に含有させる粒子は、SPAN98法で表される粒子の粒径分布が1.9以下である必要がある。SPAN98法で表される粒子の粒径分布は、好ましくは1.8以下、特に好ましくは1.7以下である。

【0031】粒子のメジアン粒径 $d_{50}$ 及び／又はPAN98法で表される粒子の粒径分布が上記範囲外の場合、フィルムの巻取り特性、フィルムの透明性およびグロスに悪影響を及ぼす。粒子のメジアン粒径 $d_{50}$ が5.0 $\mu\text{m}$ を超え、SPAN98法で表される粒子の粒径分布が1.9を超える場合、フィルムが重なった際のブロッキングが起こり易くなり、商品用ロールに巻き取った際に、図1に示す様な長手方向（ロールの周囲に沿って）しわが発生し、目視によっても確認される。この様なしわの発生により、フィルムの加工性や利用が制限され、フィルムの商品価値が下がる。このしわは後加工で解消することはできないので、メタル化フィルム、印刷フィルム、スタンピングフィルムとして加工した場合に、光学および機械的な欠陥の原因となる。特に幅の広いロール（1.5mを超える）で、24000mを超えるような長いフィルムを巻取った場合、この様なしわの発生が顕著となる。さらに、粒子のメジアン粒径 $d_{50}$ が5.0 $\mu\text{m}$ を超えるか、SPAN98法で表される粒子の粒径分布が1.9を超える場合には、フィルムの透明性が悪化し、フィルムのグロスが低下する。

【0032】粒子のメジアン粒径 $d_{50}$ が1.5 $\mu\text{m}$ 未満で、SPAN98法で表される粒子の粒径分布が1.9を超える場合、フィルムの巻取り特性および光学特性に悪影響を及ぼす。多数の小粒径の粒子（粒径が小さく且つ粒径分布が広い）がフィルム内に多数の分散中心点を形成し、フィルムの透明性およびグロスを低下させる。さらに、上記で説明した様なフィルムの巻取り特性の悪化が生じ、特に、巻取りロールに於けるフィルムのわん状変形や中心線ずれが生じる。

【0033】本発明において、フィルムの表面粗度Ra

は、通常30～150nm、好ましくは35～140nm、特に好ましくは40～130nmである。表面粗度Raが30nm未満の場合、フィルムの走行特性に逆効果を及ぼす可能性があり、一方、表面粗度Raが150nmを超える場合、フィルムの光学特性に悪影響を及ぼす可能性がある。また、フィルムの摩擦係数は通常0.6未満、好ましくは0.5未満、特に好ましくは0.40未満である。

【0034】本発明において、外層Aの表面ガス流量時間は、通常4～200秒、好ましくは5～180秒である。ガス流量時間が200秒を超えると、フィルムの巻取り特性に逆効果を及ぼす可能性がある。

【0035】本発明のポリエステルフィルムは公知の添加剤を添加してもよい。例えば、リン酸やリン酸エステル等のリン化合物の安定剤を添加することが好ましい。

【0036】本発明のポリエステルフィルムの厚さは、広い範囲をとることができ、通常3～80 $\mu\text{m}$ 、好ましくは4～50 $\mu\text{m}$ 、より好ましくは5～30 $\mu\text{m}$ である。

【0037】次いで本発明のフィルムの製造方法について説明する。本発明のフィルムは、通常、フラットフィルムダイを介して押出してアモルファスシートを得、1つ以上の冷却ロールを使用してシートを固化させ、二軸延伸し、熱固定することによって得られる。必要であれば、コロナ処理または火炎処理を施してもよい。

【0038】まず、溶融ポリマー又はポリマー混合物を押出ダイに供給し、押出する。なお粒子はすでにポリマー又はポリマー混合物中に混入してある。押出を行う前に、溶融ポリマーから不純物などを濾過することが好ましい。次いで、フラットフィルム押出ダイ（スロットダイ）を介して溶融ポリマーを押出し、1つ又は複数の冷却ロール及び引取りロールを使用して押出成形物を引取り、アモルファスシートを得る。

【0039】通常、二軸延伸は連続的に行われる。このため、初めに長手方向（機械方向）に延伸し、次いで横方向に延伸するのが好ましい。これにより分子鎖が配向する。通常、長手方向の延伸は、延伸比に対応する異なる回転速度を有するロールを使用して行われ、横手方向の延伸はテンターフレームを使用して行われる。フィルムの強度を増加させるために、横手方向の延伸を長手方向の延伸後に行うのが好ましい。

【0040】延伸時の温度は、所望とするフィルムの物性によって決定され、広い範囲で選択できる。長手方向の延伸は80～130℃の温度で、横方向の延伸は90～150℃温度で行われる。長手方向の延伸比は2.5～6、好ましくは3～5.5である。横方向の延伸比は3.0～5.0、好ましくは3.5～4.5である。本発明のフィルムには、横方向延伸前に、さらに金属接着層、印刷インク層、帯電防止または加工特性を向上させる層等をインラインコーティングにより形成してもよ

い。

【0041】メタル化またはセラミックコーティングを施した本発明のフィルムに良好な酸素ガスバリア性を付与し、巻取り特性および透明性を良好とするために、本発明のフィルムの面配向度 $\Delta p$ を好ましくは0.165以上、より好ましくは0.166以上、特に好ましくは0.167以上とする。

【0042】面配向度 $\Delta p$ は長手方向および横方向の延伸条件ならびに原料ポリマーのSV値に影響を受ける。フィルム加工におけるパラメーターとしては、長手方向および横方向延伸比( $\lambda_{MD}$ および $\lambda_{TD}$ )並びに延伸温度( $T_{MD}$ および $T_{TD}$ )、およびフィルムの延伸速度があり、特に長手方向のパラメーターが重要である。

【0043】例えば、延伸速度=370m/分、原材料のSV値が730、延伸条件が $\lambda_{MD}=3.7$ および $\lambda_{TD}=3.8$ 、 $T_{MD}=80\sim 123^{\circ}\text{C}$ 、 $T_{TD}=80\sim 126^{\circ}\text{C}$ において、面配向度 $\Delta p$ が0.163である場合、長手方向延伸温度 $T_{MD}$ を80~118℃に下げるか、横方向延伸温度 $T_{TD}$ を80~122℃に下げるか、長手方向延伸比 $\lambda_{MD}$ を4.5に増加させるか、横方向延伸比 $\lambda_{TD}$ を4.0に増加させることにより、好ましい範囲内の面配向度を達成することが出来る。上記の延伸条件はLTEP法として知られており、低延伸工程(LOE:Low Orientation Elongation)と高延伸工程(REP:Rapid Elongation Process)とが組合わせたものである。他の延伸法においては、延伸比が同じで、他のパラメーターが若干異なるだけである。なお、長手方向の延伸温度は延伸ロールの温度とし、横方向の延伸温度は赤外線測定により測定されたフィルムの温度とする。

【0044】次いでフィルムの熱固定を行う。熱固定は

150~250℃の温度において0.1~10秒間行われる。フィルムは通常の方法で巻取られる。

【0045】熱固定した2軸延伸ポリエステルフィルムの片面または両面にコロナまたは火炎処理を施してもよい。これらの処理は、フィルムの表面張力によって異なるが、通常、45mN/mの強度で行われる。

【0046】フィルムに他の所望の物性を付与するため、片面または両面に、公知のインラインコーティングにより塗布処理を施してもよい。塗布によって形成される層によって接着力を強めたり、帯電防止性や滑り性の改良したり、剥離性を持たせることが出来る。この様な付加的な層は、横延伸を行う前に水分散剤を使用したインラインコーティングによって好適に形成される。

【0047】本発明のフィルムは、上述の様に高グロス及び高透明性を有し、且つ巻取り特性が良好なために加工特性に優れている。

【0048】本発明のフィルムは、その製造工程において発生する再生原料(再生品、スクラップ、端部)をフィルムの重量に対して好ましくは20~60重量%含有させることができる。再生原料の添加によって、本発明のフィルムの物性、特に外観が大きく変化することはない。

【0049】本発明のフィルムは優れた光学特性および優れた加工特性を有する。その優れた特性故、可撓性包装材、特に高速包装機械で使用可能な可撓性包装材、工業用セクター及びスタンピング部材に好適に使用できる。

【0050】本発明のフィルムの特性を下記表1に纏めて示す。

【0051】

【表1】



|                         | 本発明の<br>通常範囲 | 好ましい<br>範囲 | より好ま<br>しい範囲 | 単位   | 測定方法                         |
|-------------------------|--------------|------------|--------------|--|------------------------------|
| グロス値<br>(20°)           | ≥150         | ≥155       | ≥160         |  | DIN67530                     |
| 摩擦係数                    | <0.60        | <0.55      | <0.50        |  | DIN 53375                    |
| 表面粗度                    | 30-150       | 35-140     | 40-130       | nm   | DIN 4768<br>カットオフ値<br>0.25mm |
| 表面ガス流量                  | 4-200        | 5-180      | 6-160        | 秒  | 本発明の<br>実施例参照                |
| ヘーズ                     | ≤4.0         | ≤3.5       | ≤3.0         | %  | ASTM D<br>1003-52            |
| 面配向度Δp                  | ≥0.165       | ≥0.166     | ≥0.167       |  | 本発明の<br>実施例参照                |
| メタル化した<br>後の酸素ガス<br>透過度 | <1.0         | <0.95      | <0.9         | cm <sup>2</sup> /<br>(m <sup>2</sup> ·d·bar) | DIN 53380                    |

## 【0052】

【実施例】以下、本発明を実施例により更に詳細に説明するが、本発明はその要旨を超えない限り、以下の実施例に限定されるものではない。以下の実施例に於て使用した測定方法を以下に記す。

【0053】(1) 標準粘度および固有粘度：ポリエステルの標準粘度SV (DCA) はジクロロ酢酸中でDIN 53726に従って測定した。ポリエステルの固有粘度IVは、標準粘度SV値を使用して以下の式より算出した。

## 【0054】

【数1】 $IV(DCA) = 6.907 \times 10^{-4} SV(DCA) + 0.063096$

【0055】(2) 摩擦係数：摩擦係数は、製造後14日後に、DIN53375に準じて測定した。

【0056】(3) 表面張力：表面張力は、“インク法”によりDIN53364に準じて測定した。

【0057】(4) ヘーズ：フィルムのヘーズは、ASTM-D 1003-52に準じて測定した。ヘルツヘーズは、ASTM-D 1003-52を基にして決定した。しかしながら、もっとも効果的な測定範囲を使用するために、4枚のフィルムを重ね、1°の隔壁スリットを4°のピンホールの代りに使用して測定を行った。

【0058】(5) グロス値：グロス値はDIN 67530に準じて測定した。反射率を、フィルム表面の光学的特性として測定した。ASTM-D 523-78及びISO 2813を基準とし、入射角を60°とした。所定の入射角で試料の平坦な表面に光線を照射すると、反射および/または散乱が起こる。光電検知器に当\* 50

\* った光が電気的な比率変数として表示される。得られた無次元値は入射角と共に表示される。

【0059】(6) 表面ガス流量特性：試験法として、フィルム的一方の面とシリコンウェハの平滑シート間に空気流を供給する方法を使用した。空気を周囲から真空域に流通させる。この場合、フィルムとシリコンウェハシートとの境界面が流れ抵抗として作用する。

【0060】シリコンウェハシート上にフィルムの円形試験片を置き、シートの中央にレシーバーに通じる開口を設ける。0.1ミリバール以下の低圧にレシーバーを真空吸引する。空気流の供給によってレシーバー内が56ミリバール昇圧されるのに要する時間を求める。試験条件を以下の表2に示す。

## 【0061】

## 【表2】

|        |                      |
|--------|----------------------|
| テスト面積： | 45.1 cm <sup>2</sup> |
| 加重量：   | 1276 g               |
| 空気温度：  | 23℃                  |
| 相対湿度：  | 50%                  |
| 総ガス体積： | 1.2 cm <sup>3</sup>  |
| 圧力差：   | 56 mbar              |

【0062】(7) 表面配向度Δpの決定：表面配向度はAbbeの屈折計を使用して、以下の手順で屈折率を測定し、決定した。

【0063】まず試料の調製を行った。試料のサイズは、長さが60~100mm、幅が測定プリズムに対応して10mmであった。

【0064】nMD：長手方向の屈折率およびnα(=n<sub>z</sub>)の測定では、縦方向にフィルムを切取って試料と

した。nTD：横方向の屈折率および $n\alpha (=nz)$ の測定では、横方向にフィルムを切取って試料とした。試料はフィルムのウェブの中央部分から採取した。温度23℃にて、Abbeの屈折計を使用して屈折率を測定した。

【0065】まず、ガラス棒を使用し、使用前に完全に洗浄したプリズムに、少量のジヨードメタン( $n=1.745$ )又はジヨードメタンプロモナフタリン混合物を塗布した。混合物の屈折率は1.685より大きい。横方向に切取った試料は、まず、プリズムの全ての表面が覆われる様にプリズムの上に配置した。拭取り紙を使用してフィルムを押付け、プリズム上に平らにしっかりと固定した。余剰の液体は吸引して除去した。フィルム上に少量のテスト試薬を滴下する。第2のプリズムを上に乗せ、確実に接する様に押付けた。明るさを明から暗に変化させた際、屈折率が1.68~1.62の範囲になるように調節した。明暗が明確でない場合は、明暗のそれぞれ一つの領域のみ可視にする様に色付けした。接眼レンズ中の2本の対角線の交点により明確な転移線がもたらされる。測定スケール上に示された値をテストレコードに記録し、長手方向の屈折率nMDとした。接眼レンズの可視領域が1.49~1.50になるまで測定を行った。

【0066】屈折率 $n\alpha$ または $nz$ (フィルムの厚さ方向の屈折率)は以下の方法で決定した。転移点の識別性を改良するため、ほんのわずかに可視化し、ポーラリティーを有するフィルムを接眼レンズの上に置き転移がはっきりとわかるまでnMDの測定と同様に行った。明暗の変化がはっきりしない場合は、上述の様に色付けを行って測定した。同様に、接眼レンズ中の2本の対角線の交点により明確な転移線がもたらされ、測定スケール上に示された値をテストレコードに記録し、屈折率 $n\alpha$ とした。試料を裏返しにして同様の測定を行い、反対面のnMD及び $n\alpha$ を測定した。

【0067】それぞれの測定が終了した後に、MD及び厚み方向にMD方向に切取られた試料を設置し、まず、A側面のnTD及び $n\alpha$ を同様の方法で測定した。次いで、試料切片を裏返しにして、B側面を測定し、A、B\*

・ポリエチレンテレフタレート(SV=800)

・ポリエチレンテレフタレート99重量%と

シリカ粒子(Sylsilia 320(登録商標、Fuji社製、日本、メジアン粒径 $d_{50}=2.5\mu\text{m}$ 、SPAN98法で表される粒子の粒径分布=1.4)1重量%とから成るマスターバッチ

【0077】フィルムの製造条件を以下の表4に示す。

【0078】

【表4】

※

\*各面の測定値を平均し、屈折率とした。表面配向度は下記式で表される。優れた酸素ガスバリアー性を得るためには、 $Nz=1.495$ であることが好ましい。

【0068】

【数2】 $\Delta n = nMD - nTD$

$\Delta p = (nMD + nTD) / 2 - nz$

$n_{av} = (nMD + nTD + nz) / 3$

【0069】(8)メジアン粒径 $d_{50}$ ：メジアン粒径 $d_{50}$ はMalvern Master Sizerを使用したレーザーによる一般的な方法で測定した(Horiba LA 500又はSympathetic Helos装置でも基本的に同一の測定である)。水を入れたセルにサンプルを入れ、試験装置にセットする。試験は自動的に行われ、粒径 $d_{50}$ の数学的な計算も一緒に行われる。

【0070】粒径 $d_{50}$ の値は、累積粒径分布曲線から決定する。図2に累積粒径分布曲線を示す。50%における $d_{50}$ の値を求めた。

【0071】(9)SPAN98の測定：粒径分布を示すSPAN98は、上記のメジアン粒径 $d_{50}$ の測定で利用した装置を使用して測定した。SPAN98は以下の式で表される。

【0072】

【数3】 $SPAN98 = (d_{98} - d_{10}) / d_{50}$

【0073】 $d_{98}$ 及び $d_{10}$ は、それぞれ、図1に示した累積粒径分布曲線の98%および10%における粒径である。図3に $d_{98}$ 及び $d_{10}$ の該当箇所を示す。

【0074】実施例1：ポリエチレンテレフタレートチップ(マンガンを経エステル交換反応の触媒として使用し、エステル交換反応にて得た。マンガン濃度：100ppm)を150℃で乾燥し、含有水分量を100ppm未満にした後、押出機に供給した。

【0075】押出した後、長手方向、横方向の延伸を行い、厚さ12 $\mu\text{m}$ の透明フィルムを得た。フィルムの構成を以下の表3に示す。

【0076】

【表3】

|          |           |       |         |
|----------|-----------|-------|---------|
| ※ <押出>   | 温度        | 90重量% | 290℃    |
|          | ダイ幅：      | 10重量% | 3.5mm   |
|          | 引取りロール温度： |       | 30℃     |
| <長手方向延伸> | 温度：       |       | 80~126℃ |
|          | 長手方向延伸比：  |       | 4.5     |
| <横方向延伸>  | 温度：       |       | 80~135℃ |
|          | 横方向延伸比：   |       | 4.0     |
| <熱固定>    | 温度：       |       | 230℃    |
|          | 時間：       |       | 3秒      |

50 【0079】得られたフィルムは、高グロス及び低ヘー

ズを有した。また、フィルムの巻取り特性および加工性は優れていた。フィルムの特性を表5及び6に示す。

【0080】実施例2：粒子の添加量を増加させた以外は実施例1と同様の操作でフィルムを作成した。得られたフィルムの巻取り特性はさらに向上した。また得られたフィルムのグロス若干低くなり、ヘーズ若干高くなった。フィルムの特性を表5及び6に示す。

【0081】実施例3：外層A及びCの添加粒子のメジアン粒径 $d_{50}$ を増加させた（SPAN98法で表される粒子の粒径分布は同一）以外は実施例1と同様の操作で10 フィルムを作成した。得られたフィルムの巻取り特性はさらに向上した。また得られたフィルムのグロスは若干低くなり、ヘーズ若干高くなった。フィルムの特性を表5及び6に示す。

【0082】実施例4：添加粒子として、さらにAer\*

\*osil（登録商標）TT 600（ヒュームドシリカ、Degussa社製）を500ppm添加した以外は実施例2と同様の操作でフィルムを作成した。フィルムの特性を表5及び6に示す。

【0083】実施例5：外層A及びCに添加した粒子をSylysia 430に代えてSylysia 320を添加した以外は実施例4と同様の操作でフィルムを作成した。フィルムの特性を表5及び6に示す。

【0084】比較例1：粒径分布の広い通常の粒子を添加した以外は実施例1と同様の操作でフィルムを作成した。フィルムの巻取り特性は大幅に悪化し、光学特性も悪化した。フィルムの特性を表5及び6に示す。

【0085】

【表5】

|                                 | 実施例  |      |      |             |             | 比較例         |
|---------------------------------|------|------|------|-------------|-------------|-------------|
|                                 | 1    | 2    | 3    | 4           | 5           | 1           |
| フィルム厚さ<br>( $\mu\text{m}$ )     | 12   | 12   | 12   | 12          | 12          | 12          |
| 粒子 <sup>1)</sup>                | 320  | 320  | 430  | 320<br>600  | 430<br>600  | X<br>600    |
| 粒子のメジアン<br>粒径 ( $\mu\text{m}$ ) | 2.5  | 2.5  | 3.4  | 2.5<br>0.05 | 3.4<br>0.05 | 5.5<br>0.40 |
| 粒子濃度<br>(ppm)                   | 1000 | 1800 | 1000 | 1000<br>500 | 1000<br>500 | 1000<br>500 |

1) 320: Sylysia 320、430: Sylysia 430、600: Aerosil TT 600

X: メジアン粒径=5.5 $\mu\text{m}$ 、SPAN 98-2.2である粒子

【0086】

※ ※【表6】

|                           | 実施例   |       |       |       |       | 比較例 |
|---------------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-----|
|                           | 1     | 2     | 3     | 4     | 5     | 1   |
| 摩擦係数<br>A表面対C表面           | 0.45  | 0.41  | 0.48  | 0.38  | 0.40  | -   |
| 表面粗度<br>(nm)              |       |       |       |       |       |     |
| A表面                       | 57    | 61    | 88    | 60    | 84    | -   |
| C表面                       | 53    | 60    | 84    | 63    | 82    | -   |
| 表面ガス流量<br>(秒)             |       |       |       |       |       |     |
| A表面                       | 91    | 71    | 30    | 82    | 28    | -   |
| C表面                       | 86    | 74    | 24    | 73    | 31    | -   |
| 面配向度 $\Delta p$           | 0.167 | 0.167 | 0.167 | 0.167 | 0.167 | -   |
| グロス                       |       |       |       |       |       |     |
| A表面                       | 182   | 171   | 174   | 170   | 170   | -   |
| C表面                       | 180   | 173   | 175   | 173   | 169   | -   |
| ヘーズ (%)                   | 3.0   | 3.5   | 3.1   | 3.2   | 3.3   | -   |
| 巻取り特性および取扱性 <sup>1)</sup> | C     | B     | B     | B     | A     | D   |
| 加工特性 <sup>1)</sup>        | C     | B     | B     | B     | A     | D   |

1) 巻取り特性および加工特性の評価基準は以下の通りである。

- A: ロール及びその他の製造装置への付着が無く、ブロッキングは起らず、長手方向へのしわは発生せず、加工特性は優。
- B: ロール及びその他の製造装置への付着が無く、ブロッキングは起らず、長手方向へのしわは発生せず、加工特性は良。
- C: ロール及びその他の製造装置への付着が無く、ブロッキングは起らず、多くても1箇所狭い範囲で長手方向へのしわが認められる程度であり、加工特性は可。
- D: ロール及びその他の製造装置への付着が多く、ブロッキングの問題があり、長手方向へのしわが認められ、包装機械での加工特性は不良。

【0087】

【発明の効果】本発明の透明二軸延伸ポリエステルフィルムは、高グロス且つ低ヘーズで、優れた巻取り特性を有し、酸素ガスバリア性に優れ、製造工程にて生じるフィルム端部をフィルムの物性に影響を及ぼすことなくフィルムの総重量の60重量%まで混入することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】(a) 商品用フィルムロール上に発生する長手方向のしわを表した模式図

\* (b) しわ部の拡大図

【図2】粒子の累積粒径分布曲線の $d_{50}$ を示した図

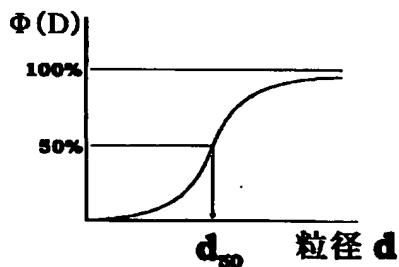
【図3】粒子の累積粒径分布曲線の $d_{98}$ 及び $d_{10}$ を示した図

【符号の説明】

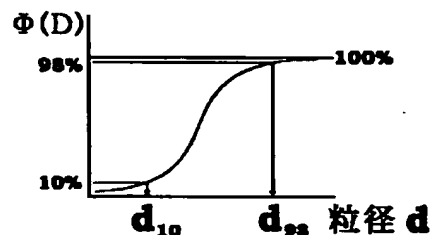
- 1: 商品用フィルムロール  
2: フィルムロール  
3: フィルム  
4: 長手方向に発生したフィルムのしわ

\*

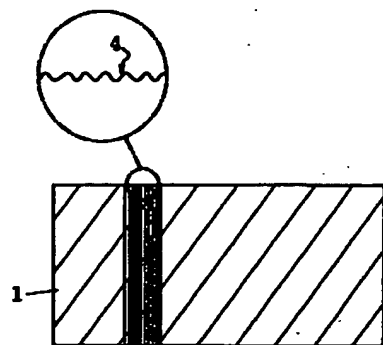
【図2】



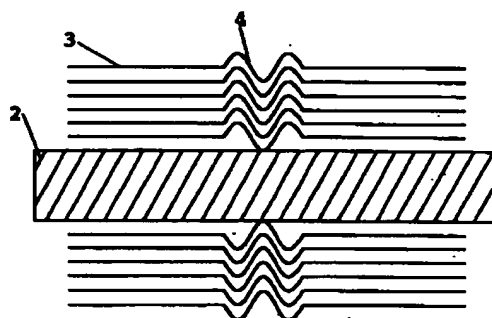
【図3】



【図1】



(a)



(b)

## フロントページの続き

(51)Int. Cl.<sup>7</sup>

識別記号

F I

テーマコード(参考)

B 2 9 L 7:00

B 2 9 L 7:00

C 0 8 L 67:00

C 0 8 L 67:00

(72)発明者 ゴットフリート・ヒルケルト  
 ドイツ連邦共和国、ディー-55291 ザウ  
 ルハイム、シュエッツェンストラッセ 12

Fターム(参考) 4F071 AA43 AA45 AA46 AB26 AD02  
 AE17 AF30Y BB06 BB08  
 BC01 BC12 BC16  
 4F210 AA26 AB17 AF14 AG01 AH54  
 AR06 AR12 QA02 QA03 QC06  
 QD13 QG01 QG18 QW07 QW34

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☒ BLACK BORDERS
- ☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☒ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☒ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☒ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**